

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-080745

(43)Date of publication of application : 26.03.1999

(51)Int.Cl.

C10G 1/10
B09B 3/00
C08J 11/14
C08J 11/16
C10L 3/00
// B29K101:00
B29K105:26

(21)Application number : 09-245024

(22)Date of filing : 10.09.1997

(71)Applicant : HITACHI LTD

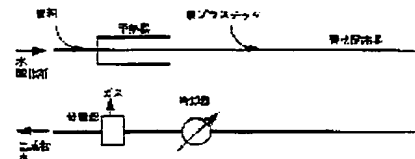
(72)Inventor : HONCHI AKIO
MUKAIDE MASAOKI
OKOCHI ISAO
HIDA HIROSHI
YAMASHITA HISAO
FUKUSHIMA TOSHIHIKO

(54) WASTE PLASTIC RECYCLING SYSTEM

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To convert a waste plastic into monomers, oils, gases, etc., by mixing water with a fuel and an oxidizing agent, burning the fuel to raise the temperature of water to a supercritical state and then feeding the waste plastic.

SOLUTION: Water is mixed with a fuel such as a hydrocarbon and/or an alcohol and an oxidizing agent such as hydrogen peroxide and/or air, etc., and the fuel is burned preferably in the presence of an oxidation catalyst such as an element of the group 8 of the periodic table to raise the temperature of water to a supercritical state or a subcritical state. Then a waste plastic is supplied to the system to convert the waste plastic into monomers, oils, gases, etc.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

30.03.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Best Available Copy

*** NOTICES ***

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2. **** shows the word which can not be translated.

3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The waste plastic recycle system characterized by changing this waste plastic into a monomer, an oil, gas, etc. by mixing an oxidizer with a fuel in water, carrying out temperature up of said water to supercritical or a subcritical state by burning a fuel, and supplying a waste plastic after that in the waste plastic recycle system which changes a waste plastic into a monomer, an oil, gas, etc., and changes it into a reusable gestalt with supercritical water.

[Claim 2] The waste plastic recycle system characterized by controlling reaction temperature by changing said amount of fuel supply in claim 1 based on the presentation after said waste plastic was changed by a monomer, an oil, gas, etc.

[Claim 3] The waste plastic recycle system with which said fuel is characterized by a hydrocarbon or/and alcohol, and said oxidizing agent being a hydrogen peroxide, oxygen or/, and air in claim 1.

[Claim 4] The waste plastic recycle system characterized by the reaction of said fuel and oxidizing agent advancing by coexistence-ization of an oxidation catalyst in claim 1.

[Claim 5] The waste plastic recycle system with which said oxidation catalyst is characterized by including the 8th group element of the periodic table in claim 4.

[Claim 6] The waste plastic recycle system characterized by controlling said oxidizing agent amount of supply in claim 1 using the oxygen density before said waste plastic supply.

[Claim 7] The waste plastic recycle system characterized by grinding said waste plastic and being supplied after mixing with water in claim 1.

[Claim 8] The waste plastic recycle system characterized by collecting the heat which the water-monomer after changing said waste plastic into a monomer, an oil, and gas,

an oil, or gas has in claim 1, using for a part of temperature up of said water, separating a monomer, an oil, or gas from water after a temperature fall, and reusing water.

[Claim 9] In the waste plastic recycle system which changes a waste plastic into a monomer, an oil, gas, etc., and changes it into a reusable gestalt with supercritical water Supply water from the inlet port of a tubular reactor, and a fuel and an oxidizer are supplied from two branch pipes formed in the coil, respectively. The waste plastic recycle system characterized by forming the branch pipe for carrying out temperature up of said water to supercritical or a subcritical state, and supplying waste plastic or waste plastic-water mixture to the downstream of said two branch pipes by burning said fuel.

[Claim 10] The waste plastic recycle system characterized by preparing an oxidation catalyst layer in the fuel combustion part between said two branch pipes and the branch pipe formed in the downstream in claim 9.

[Claim 11] The waste plastic recycle system characterized by changing this waste plastic into a monomer, an oil, gas, etc. by supplying water, a fuel, and an oxidizer from the lower part of a fluidized bed reactor, carrying out temperature up of this water by combustion of this fuel in the waste plastic recycle system which changes a waste plastic into a monomer, an oil, gas, etc., and changes it into a reusable gestalt with supercritical water, considering as the water of supercritical or a subcritical state, and supplying waste plastic or waste plastic-water mixture there.

[Claim 12] The waste plastic recycle system characterized by containing a basic compound in said fluid bed in claim 11.

[Claim 13] The waste plastic recycle system with which the bed material contained inside said fluidized bed reactor is characterized by including an oxidation catalyst in an oxidation catalyst or a bed material in claim 11.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the waste plastic recycle system which changes a waste industrial product into the valuables which were collected by grinding [crushing] and sorting out, and which can reuse a waste plastic like a monomer, an oil, and gas.

[0002]

[Description of the Prior Art] Plastics, a metal, glass, etc. are contained in the waste industrial product, a waste industrial product is crushed and ground, magnetism, an eddy current, and a wind force sort out a valuable metal, and development of the technique divided into plastics, a valuable metal, and dust is furthered. Although recovery and reuse are possible about a valuable metal, about reuse of plastics, it has stopped at the material recycle again used as plastics. Moreover, about dust, although plastics is a principal component, since metals are contained including various plastics, recycle is difficult. About the plastics which cannot carry out material recycle, there is no approach of processing in addition to reclamation or incineration.

[0003] The approach of on the other hand hydrolyzing or pyrolyzing, using supercritical water (water more than 374 degrees C and the critical point of 22Mpa) or subcritical water as a new approach of a waste plastic is tried (for example, JP,5-31000,A). However, in order to use this approach industrially, the development technical problem of many, such as a warm up procedure and the operation / control approach, occurs.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] This invention aims at establishing the system which changes the plastics and dust containing inorganic substances sorted out and collected, such as variety plastics and a metal, into a monomer, an oil, and the valuables in which reuse like gas is possible, and recycles them from a waste industrial product with supercritical water or subcritical water.

[0005]

[Means for Solving the Problem] As a result of doing research and development wholeheartedly, this invention is produced about the approach of changing into a recyclable gestalt with supercritical water or subcritical water about the plastics and dust which are obtained after crushing and sorting out a waste industrial product, in order to solve the above-mentioned technical problem.

[0006] That is, the approach for heating water first and making it supercritical or a subcritical state was examined. There is a method of heating water with an electric furnace etc. from the exterior as a heat source for carrying out temperature up to the above near the critical point. However, when heating from the outside, there is a problem of rate of heat transfer, effectiveness is bad and a mass furnace is needed. Then, when artificers put in the fuel and the oxidizer into water and temperature up could be carried out to combustion initiation temperature, I thought after it that temperature up would be possible to the temperature near the critical point beyond it

with heat of combustion. As a fuel, carbon content compounds, such as kerosene, gas oil, a methanol, and ethanol, can be used. What is necessary is just to use a hydrogen peroxide, air, or oxygen as an oxidizer. In the result of an experiment, when there was the amount of oxidizers to a fuel more than the equivalent, although it changed with fuel classes, combustion began from about 200 degrees C, and it has checked that temperature rose depending on fuel concentration. It is possible to carry out temperature up of the water even to supercritical or subcritical by this, even if it does not heat from the outside. It was made for the oxidizer amount of supply not to be in an oxidizer lack condition by asking for the residual oxidizer concentration after fuel combustion, and carrying out feedback control so that an oxidizer may remain a little. In addition, products of combustion is a carbon dioxide and there is almost no effect to processing of plastics.

[0007] Next, examination was advanced about processing of the dust containing inorganic substances obtained by grinding and sorting out a waste industrial product, especially a disposable-household-electric-appliances article, such as variety plastics and a metal. If recycle of the plastics in dust is possible, compared with dust, it will become possible naturally also about sorting and the collected recycle of plastics with high purity. Then, the experiment was mainly advanced for dust.

[0008] About 70% of plastics is contained in the used dust. Plastics is crossed to a variety. Although it changes with classes of dust, as thermoplastics, polyethylene, polypropylene, polystyrene, polyvinyl chloride resin, polyethylene terephthalate, etc. are phenol resin, a urea resin, melamine resin, an unsaturated polyester resin, an epoxy resin, urethane foam, etc. as thermosetting resin. When processing with supercritical water or subcritical water, the plastics kind which can be disassembled changes with temperature and pressures. On condition that a certain temperature and a pressure, if temperature is too high, decomposition will advance, and matter like polyethylene terephthalate which decomposes and is easy to be changed into a monomer will be changed even into an oil or gas, for example. On the other hand, in the plastics which is hard to be decomposed, if temperature is low, decomposition will not advance. Therefore, selection of the conditions for it being the most economical or collecting the products of the presentation made into the object is needed. In this invention, when the reaction made into the object was not obtained from a product presentation, how (fuel is interlocked with and the oxidizer amount of supply also changes change) and reaction temperature was taken by changing the amount for temperature up of fuel supply.

[0009] Since it is generated in the mixed state, a product will need to use the

separation approach properly suitably with the presentation. About the separation approach, the existing various approaches are applicable. Moreover, purification of a product is also required if needed. The existing approach is applicable also about purification.

[0010] Moreover, the vinyl chloride resin containing chlorine etc. is contained in plastics. By decomposition, chlorinated plastics generates chlorine. In water, it becomes a hydrochloric acid, and since corrosive [strong] is shown, there is a problem that an equipment ingredient corrodes. What is necessary is to add an alkali like a sodium hydroxide and a calcium carbonate beforehand underwater, and just to neutralize as the cure.

[0011] As an approach of carrying out temperature up of the water to supercritical or a subcritical state, when supplying heat from the exterior, since heat is transmitted in a reaction vessel wall and reaches water, it is influenced of rate of heat transfer. Moreover, there is heat loss transmitted in a reaction vessel wall. Since the temperature of water is raised with the heat of combustion by the reaction of a fuel and an oxidizer, there are not rate-of-heat-transfer lowering by the reaction vessel wall and heat loss, and water temperature can be promptly raised [be / it / under / of water / setting] in this invention more than it near the critical point. Moreover, to a fuel, if there are too many amounts of oxidizing agents, an oxidizing agent will remain, and it will react with plastics, and will be changed into a carbon monoxide or a carbon dioxide. Then, control of the amount of oxidizers becomes important. In this invention, the amount of superfluous oxidizing agents after combustion is detected, and it includes carrying out feedback control so that the oxidizing agent beyond the need may not be supplied.

[0012] In case a waste plastic is introduced into supercritical or subcritical water, it mixes with the approach of pulverizing (for example, frozen crushing) and supplying as it is, or water, and it is made the shape of a slurry or sherbet, and supplies. If a waste plastic contacts the water of supercritical or a subcritical state, plastics will hydrolyze or pyrolyze and low-molecular-weight-ization will start.

Low-molecular-weight-ization is influenced by temperature, the pressure, time amount, especially temperature and time amount. Moreover, it changes also with plastics kinds. Plastics, and the metaled class and metaled amount which are contained as the purity and the impurity of plastics which are collected with the waste industrial product to process change. So, in order to collect the target processing products efficiently, it is necessary to always supervise a product and to control the temperature of a reaction, a pressure, and time amount. In this invention, the

presentation of a product is searched for periodically, and feedback control is performed so that temperature, a pressure, and time amount may be maintained by the proper value based on this. When there are many amounts of gas generation, reaction temperature is a little more specifically reduced by what (the amount of oxidizers is also decreased simultaneously) is decreased in the amount of the fuel mixed in water. Or the increment in a water flow rate or the waste plastic amount of supply is made to increase, and compaction of reaction time is aimed at.

[0013]

[Embodiment of the Invention] The example of this invention is explained below.

[0014] (Example 1) The system shown in drawing 1 was produced using the tubular reactor. SUS tubing with a bore [of 5.5mm] and a die length of 770mm (die length from a plastics feed zone to a condensator) was used for the reactor. The electric furnace was used for the preheater and temperature up was carried out to it to the combustion initiation temperature of a fuel. The methanol was used as a fuel and the hydrogen peroxide was used as an oxidizer. Consequently, in consideration of heat dissipation, the temperature up predicted from the calorific value of a methanol was accepted, and temperature in the point supplying [waste plastic] was able to be made into 400 degrees C. As a waste plastic, it is the particle size of about 0.1mm about polyethylene terephthalate. It ground, and it mixed with water, and it was made the shape of a slurry and supplied. The reaction mean temperature was maintained at about 400 degrees C. When the product was analyzed after cooling, it turned out that ethylene glycol and a terephthalic acid are accepted and polyethylene terephthalate is changed into the monomer.

[0015] (Example 2) It tried to change reaction temperature like the example 1 by changing the amount of fuel supply (the oxidizer amount of supply also changing with the amounts of fuel supply). It checked that reaction temperature changed by 2 or decreasing the amount of fuel supply to $3/2$ by an increment or $3/4$, $1/2$, or $1/4$ time. At this time, the amount of supply of an oxidizer was also interlocked with the amount of fuel supply, and supplied the complement to combustion. At this time, the rate of a monomer, gas, and an oil changed with change of reaction temperature among decomposition products. In order to obtain the product made into the object from this, it turned out that what is necessary is to control the amount of fuel supply based on a product presentation, and just to change reaction temperature.

[0016] (Example 3) It experimented like the example 1 except using oxygen as an oxidizer. However, in order to supply oxygen, as shown in drawing 2, the branch pipe for oxidizer supply and the branch pipe for fuel supply were formed in the water supply

pipe, and fuel supply of the branch pipe of the upstream to the oxygen was carried out from the branch pipe of the downstream. The preheating section and the combustion section are called the temperature-up section even for the combustion initiation after fuel supply. Consequently, even if it used oxygen as an oxidizer, the same result as an example 1 was obtained.

[0017] Moreover, in the fuel, even if it supplied the branch pipe of the downstream to the oxidizer, the same result was obtained from the branch pipe of the upstream.

[0018] (Example 4) The oxidation catalyst was inserted in the temperature-up section of Hazama of a fuel-supply branch pipe and a waste plastic supply branch pipe like the example 2. Arrangement of a catalyst is shown in drawing 3. As an oxidation catalyst, what supported platinum, palladium, and nickel was used on the alumina particle. Consequently, even if it used which catalyst, compared with the example 2, it checked that it was possible to reduce the temperature of the preheating section.

[0019] (Example 5) In order to collect the heat after a reaction and to use for a preheating like an example 1, the condensator was removed and between duplexes was attached in the preheater part as the heat recovery section. A system is shown in drawing 4. The water containing the fuel and oxidizer which pass the water after reacting to duplex Hazama's outer tube part along a sink and an inner tube was preheated. Consequently, preheat temperature rose beyond the combustion initiation temperature of a fuel, and was able to reduce fuel used.

[0020] (Example 6) Although the tubular reactor was used until now, the fluid bed reactor which filled up sand with this example into the interior as a bed material was used. The structure of a fluid bed reactor is shown in drawing 5. It is the structure which can supply a fuel, an oxidizer, and water from the fluid bed lower part. Moreover, the waste plastic feed hopper was prepared a fuel, an oxidizing agent, and above the feed hopper of water, and the waste plastic was supplied. As an oxidizer, air was used and kerosene was used for the fuel. In order to start an experiment, the fuel could be made to carry out temperature up of the electric furnace (not shown all over drawing) to the reactor lower part beforehand to anchoring and the temperature which starts combustion. Once it carried out temperature up, after that, with the heat of combustion of a fuel, it could maintain beyond combustion initiation temperature and an electric furnace did not need to be used. As a waste plastic, it is the particle size of about 0.5mm about the shredder dust which came out of crushing and grinding / sorting process of a disposable-household-electric-appliances article. It ground, and it mixed with water and supplied.

[0021] Consequently, the great portion of plastics contained in dust decomposed, and

the decomposition product of gas, an oil, etc. was acquired from upside extraction opening.

[0022] (Example 7) It experimented like the example 5 except using a limestone as a bed material of the fluid bed. The great portion of plastics contained in dust decomposed like the example 5, and the decomposition product of gas, an oil, etc. was acquired from upside extraction opening. When the limestone which is a bed material was analyzed after experiment termination, the calcium chloride was detected and it became clear that the chlorine contained in plastics is being fixed to the limestone which is a bed material.

[0023]

[Effect of the Invention] Since reaction temperature is controllable by being able to carry out temperature up efficiently and changing the amount of fuel supply, since according to this invention a fuel and an oxidizer are added in water and temperature up of the water is carried out with the heat of combustion of a fuel, the target resultant is efficiently recoverable.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] Drawing showing one example of the waste plastic recycle system of this invention.

[Drawing 2] An oxidizing agent, a fuel, drawing showing the supply approach of a waste plastic, and a tubular reactor.

[Drawing 3] Drawing showing arrangement of a catalyst.

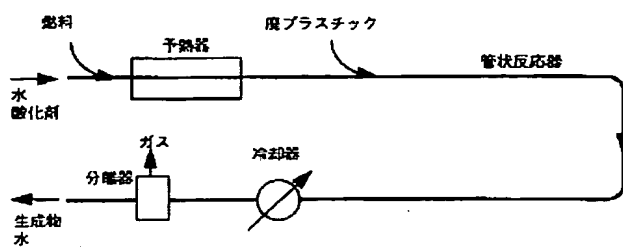
[Drawing 4] Drawing showing one example of the waste plastic recycle system incorporating heat recovery.

[Drawing 5] The structure **** Fig. of a fluid bed reactor.

DRAWINGS

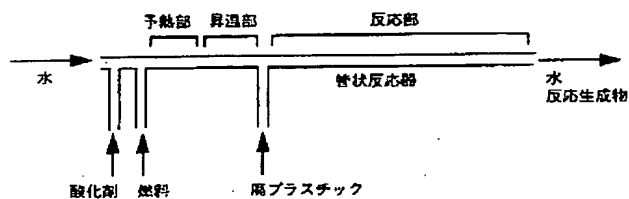
[Drawing 1]

図 1



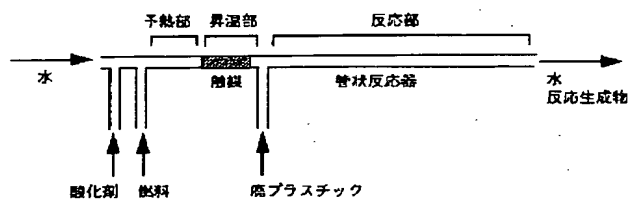
[Drawing 2]

図 2



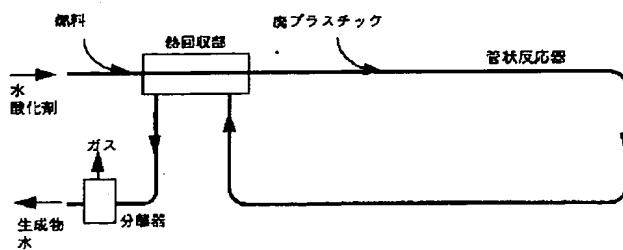
[Drawing 3]

図 3



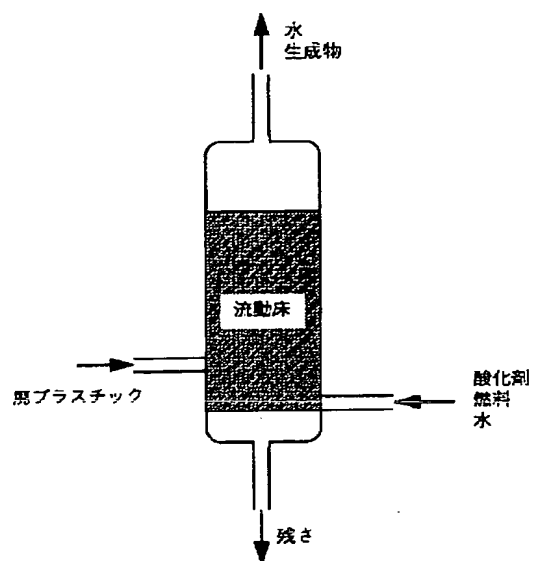
[Drawing 4]

図 4



[Drawing 5]

図 5



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-80745

(43) 公開日 平成11年(1999) 3月26日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	F I
C 1 0 G 1/10		C 1 0 G 1/10
B 0 9 B 3/00		C 0 8 J 11/14 Z A B
C 0 8 J 11/14	Z A B	11/16 Z A B
11/16	Z A B	B 0 9 B 3/00 3 0 3 E
C 1 0 L 3/00		C 1 0 L 3/00 Z

審査請求 未請求 請求項の数13 O L (全 6 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平9-245024

(22) 出願日 平成9年(1997) 9月10日

(71) 出願人 000005108

株式会社日立製作所

東京都千代田区神田駿河台四丁目6番地

(72) 発明者 本地 章夫

茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株

式会社日立製作所日立研究所内

(72) 発明者 向出 正明

茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株

式会社日立製作所日立研究所内

(72) 発明者 大河内 功

茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株

式会社日立製作所日立研究所内

(74) 代理人 弁理士 小川 勝男

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 廃プラスチックリサイクルシステム

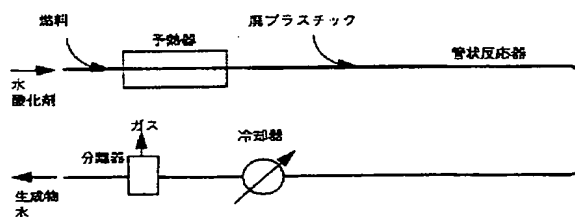
(57) 【要約】

【課題】 廃工業製品を粉碎・選別して回収される廃プラスチック、ダストを超臨界あるいは亜臨界の水中で分解して、リサイクル可能な形態に変換し、再利用を図ることを目的とした。

【解決手段】 水に燃料と酸化剤を加えて、燃料の燃焼熱により水を昇温し、昇温後に廃プラスチック、ダストを供給して、モノマー、油、ガス等の再利用可能な形態に分解する。

【効果】 これにより、水を迅速に昇温でき、同時に燃料添加量を制御することで、目的とする生成物を効率よく回収するため、温度制御することが可能となる。

図 1



【特許請求の範囲】

【請求項1】 廃プラスチックを超臨界水により、モノマー、油、ガス等に変換して再利用可能な形態に変換する廃プラスチックリサイクルシステムにおいて、水に燃料と酸化剤を混合して、燃料を燃焼させることにより前記水を超臨界あるいは亜臨界状態まで昇温させ、その後に廃プラスチックを供給することにより、該廃プラスチックをモノマー、油、ガス等に変換することを特徴とする廃プラスチックリサイクルシステム。

【請求項2】 請求項1において、前記廃プラスチックをモノマー、油、ガス等に変換された後の組成に基づいて、前記燃料供給量を変化させることにより、反応温度を制御することを特徴とする廃プラスチックリサイクルシステム。

【請求項3】 請求項1において、前記燃料が炭化水素、あるいは／及びアルコール、前記酸化剤が過酸化水素、酸素あるいは／及び空気であることを特徴とする廃プラスチックリサイクルシステム。

【請求項4】 請求項1において、前記燃料と酸化剤の反応が酸化触媒の共存化で進行することを特徴とする廃プラスチックリサイクルシステム。

【請求項5】 請求項4において、前記酸化触媒が、周期表第8族元素を含むことを特徴とする廃プラスチックリサイクルシステム。

【請求項6】 請求項1において、前記廃プラスチック供給前の酸素濃度を用いて、前記酸化剤供給量を制御することを特徴とする廃プラスチックリサイクルシステム。

【請求項7】 請求項1において、前記廃プラスチックが粉碎され、水と混合後に供給されることを特徴とする廃プラスチックリサイクルシステム。

【請求項8】 請求項1において、前記廃プラスチックをモノマー、油、ガスに変換した後の水-モノマー、油、あるいはガスの有する熱を回収し、前記水の昇温の一部に利用し、降温後に水からモノマー、油、あるいはガスを分離し、水を再利用することを特徴とする廃プラスチックリサイクルシステム。

【請求項9】 廃プラスチックを超臨界水により、モノマー、油、ガス等に変換して再利用可能な形態に変換する廃プラスチックリサイクルシステムにおいて、管状反応器の入口から水を供給し、反応管に設けられた2本の枝管から、それぞれ燃料、酸化剤を供給して、前記燃料を燃焼させることにより前記水を超臨界あるいは亜臨界状態まで昇温させ、かつ前記2本の枝管の下流側に廃プラスチックあるいは廃プラスチック-水混合物を供給するための枝管が設けられていることを特徴とする廃プラスチックリサイクルシステム。

【請求項10】 請求項9において、前記2本の枝管とその下流側に設けられた枝管の間の燃料燃焼部分に酸化触媒層を設けたことを特徴とする廃プラスチックリサイクルシステム。

【請求項11】 廃プラスチックを超臨界水により、モノマー、油、ガス等に変換して再利用可能な形態に変換する廃プラスチックリサイクルシステムにおいて、流動層反応器の下部から水、燃料、及び酸化剤が供給され、該燃料の燃焼により該水を昇温させて超臨界あるいは亜臨界状態の水とし、そこに廃プラスチックあるいは廃プラスチック-水混合物を供給することにより、該廃プラスチックをモノマー、油、ガス等に変換することを特徴とする廃プラスチックリサイクルシステム。

【請求項12】 請求項11において、前記流動層内に塩基性化合物を含有することを特徴とする廃プラスチックリサイクルシステム。

【請求項13】 請求項11において、前記流動層反応器の内部に含まれる流動媒体が酸化触媒、あるいは流動媒体中に酸化触媒が含まれることを特徴とする廃プラスチックリサイクルシステム。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、廃工業製品を破碎・粉碎・選別して回収された、廃プラスチックをモノマー、油、ガスのような再利用可能な有価物に変換する、廃プラスチックリサイクルシステムに関する。

【0002】

【従来の技術】 廃工業製品にはプラスチック、金属、ガラス等が含まれており、廃工業製品を破碎・粉碎し、磁力、渦電流、風力により有価金属を選別し、プラスチック、有価金属、ダストに分ける技術の開発が進められている。有価金属については回収・再利用可能であるが、プラスチックの再利用については、再びプラスチックとして利用するマテリアルリサイクルに留まっている。また、ダストについてはプラスチックが主成分であるが、多種のプラスチックを含み、かつ金属類も含有するため、リサイクルが困難である。マテリアルリサイクルできないプラスチックについては、埋立あるいは焼却以外に処理する方法がない。

【0003】 一方、廃プラスチックの新しい処理法として、超臨界水（374℃、22Mpaの臨界点以上の水）あるいは亜臨界水を用いて加水分解あるいは熱分解する方法が試みられている（例えば特開平5-31000号）。しかし、本方法を工業的に利用するためには、昇温方法、運転・制御方法、等数々の開発課題がある。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、超臨界水あるいは亜臨界水により、廃工業製品から選別・回収された、多種プラスチック、金属等の無機物を含むプラスチック、ダストを、モノマー、油、ガスのような再利用可能な有価物に変換してリサイクルするシステムを確立することを目的とする。

【0005】

【課題を解決するための手段】 本発明は、上記課題を解

決するため、廃工業製品を破碎・選別した後に得られるプラスチック、ダストについて、超臨界水あるいは亜臨界水により、リサイクル可能な形態に変換する方法について、鋭意研究開発を実施した結果生まれたものである。

【0006】すなわち、まず水を加熱して超臨界あるいは亜臨界状態にするための方法について検討した。水を臨界点近傍あるいは以上に昇温するための熱源としては、外部から電気炉等で加熱する方法がある。しかし、外部から加熱する場合、伝熱速度の問題があり、効率が悪く、大容量の炉が必要になる。そこで、発明者らは水の中に燃料と酸化剤を入れて燃焼開始温度まで昇温できれば、それ以降は燃焼熱により臨界点近傍あるいはそれ以上の温度まで昇温可能ではないかと考えた。燃料としては灯油、軽油、メタノール、エタノール等の炭素含有化合物を使用できる。酸化剤として過酸化水素、空気、あるいは酸素を用いれば良い。実験の結果では、燃料に対する酸化剤量が当量以上あれば、燃料種類により異なるが200℃程度から燃焼が開始し、燃料濃度に依存して温度が上昇することを確認できた。これにより、外部から加熱しなくても、水を超臨界あるいは亜臨界にまで昇温することが可能である。酸化剤供給量は、燃料燃焼後の残存酸化剤濃度を求め、若干酸化剤が残存するようにフィードバック制御することにより、酸化剤不足状態にならないようにした。なお、燃焼生成物は二酸化炭素であり、プラスチックの処理に対する影響はほとんどない。

【0007】次に、廃工業製品、特に廃家電品を粉碎・選別して得られる、多種プラスチック、金属等の無機物を含有するダストの処理について検討を進めた。ダスト中のプラスチックのリサイクルが可能であれば、ダストと比べて純度の高い、選別・回収されたプラスチックのリサイクルについても当然可能となる。そこで、ダストを主に実験を進めた。

【0008】使用したダストには約70%のプラスチックが含まれている。プラスチックは多種に渡る。ダストの種類により異なるが、熱可塑性樹脂としてはポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル樹脂、ポリエチレンテレフタレート等、熱硬化性樹脂としてフェノール樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、エポキシ樹脂、ウレタンフォーム等である。超臨界水あるいは亜臨界水で処理する場合、温度、圧力により、分解可能なプラスチック種は異なる。ある温度、圧力の条件では、例えばポリエチレンテレフタレートのような分解してモノマーに変換されやすい物質は、温度が高すぎると分解が進行して、油あるいはガスにまで変換されてしまう。一方、分解され難いプラスチックでは、温度が低いと分解が進行しない。従って、最も経済的な、あるいは目的とする組成の生成物を回収するための条件の選定が必要になる。本発明では、

生成物組成から、目的とする反応が得られていない場合には、昇温用燃料供給量を変えることにより（燃料に連動して酸化剤供給量も変化）、反応温度を変更するという手法を取った。

【0009】生成物は混合状態で生じるため、その組成によって分離方法を適宜使い分ける必要が生じる。分離方法については既存の種々の方法を適用できる。また、必要に応じて、生成物の精製も必要である。精製についても既存の方法を適用可能である。

【0010】また、プラスチックの中には、塩素を含有する塩化ビニル樹脂等も含まれている。含塩素プラスチックは分解により、塩素を発生する。水のなかでは塩酸となり、強い腐食性を示すので装置材料が腐食するという問題がある。その対策としては、水中にあらかじめ水酸化ナトリウム、炭酸カルシウムのような塩基性物質を添加しておき、中和すれば良い。

【0011】水を超臨界あるいは亜臨界状態まで昇温する方法として、外部から熱を供給する場合、熱は反応容器壁を伝わって、水に達するため、伝熱速度の影響を受ける。また、反応容器壁を伝わる熱損失がある。本発明では、水の中において、燃料と酸化剤との反応による燃焼熱により水の温度を上げるため、反応容器壁による伝熱速度低下、熱損失がなく、水温を迅速に臨界点近傍あるいはそれ以上に上げることができる。また、燃料に対して酸化剤が多すぎると、酸化剤が残留し、プラスチックと反応して一酸化炭素や二酸化炭素に変換されてしまう。そこで、酸化剤量の制御が重要となる。本発明では燃焼後の過剰酸化剤量を検出し、必要以上の酸化剤が供給されることのないようにフィードバック制御することを含んでいる。

【0012】超臨界あるいは亜臨界の水に廃プラスチックを導入する際には、粉碎（例えば冷凍破碎）してそのまま供給する方法、あるいは水と混合してスラリーあるいはシャーベット状にして供給する。廃プラスチックが超臨界あるいは亜臨界状態の水に接触すると、プラスチックが加水分解あるいは熱分解し、低分子量化が始まる。低分子量化は温度、圧力、時間、特に温度と時間によって影響を受ける。また、プラスチック種によっても異なる。処理する廃工業製品により回収されるプラスチックの純度や不純物として含まれるプラスチック、金属の種類や量が変化する。そこで、目的とする処理生成物を効率良く回収するためには、生成物を常に監視して、反応の温度、圧力、時間を制御する必要がある。本発明では、生成物の組成を定期的に求め、これをもとに温度、圧力、時間が適正值に維持されるようにフィードバック制御を行う。もう少し具体的には、ガス生成量が多い場合には、水に混合する燃料の量を減少する（同時に酸化剤量も減少させる）ことにより反応温度を低下させる。または水流量増加あるいは廃プラスチック供給量を増加させ、反応時間の短縮をはかる。

【0013】

【発明の実施の形態】以下に本発明の実施例について説明する。

【0014】（実施例1）管状反応器を用いて、図1に示すシステムを作製した。反応器には内径5.5mm、長さ770mm（プラスチック供給部から冷却器までの長さ）のSUS管を用いた。予熱器には電気炉を使用し、燃料の燃焼開始温度まで昇温した。燃料としてメタノールを、酸化剤として過酸化水素を使用した。その結果、放熱を考慮して、メタノールの発熱量から予測される昇温が認められ、廃プラスチック供給点での温度を400℃にすることができた。廃プラスチックとして、ポリエチレンテレフタレートを粒径約0.1mmに粉碎し、水と混合してスラリー状にして供給した。反応平均温度を約400℃に維持した。冷却後に生成物を分析したところ、エチレングリコールとテレフタル酸が認められ、ポリエチレンテレフタレートがモノマーに変換されていることがわかった。

【0015】（実施例2）実施例1と同様にして、燃料供給量を変えること（燃料供給量によって酸化剤供給量も変化）により、反応温度を変えることを試みた。燃料供給量を2、あるいは3/2倍に増加、または3/4、1/2、あるいは1/4倍に減少させることにより、反応温度が変化することを確認した。このとき、酸化剤の供給量も、燃料供給量に連動させ、燃焼に必要な量を供給した。このとき反応温度の変化により、分解生成物のうち、モノマー、ガス、油の割合が変化した。このことから、目的とする生成物を得るためには、生成物組成に基づいて燃料供給量を制御して、反応温度を変えれば良いことがわかった。

【0016】（実施例3）酸化剤として酸素を使用する以外は実施例1と同様にして、実験した。但し、酸素を供給するため、図2に示すように、水供給管に酸化剤供給用枝管と燃料供給用枝管を設け、上流側の枝管から酸素を、下流側の枝管から燃料供給した。燃料供給後の燃焼開始までを予熱部、燃焼部を昇温部と称している。この結果、酸化剤として酸素を使用しても実施例1と同様の結果が得られた。

【0017】また、上流側の枝管から燃料を、下流側の枝管から酸化剤を供給しても、同様の結果が得られた。

【0018】（実施例4）実施例2と同様にして、燃料供給枝管と廃プラスチック供給枝管の間の昇温部に酸化触媒を挿入した。触媒の配置を図3に示す。酸化触媒としてはアルミナ粒子上に白金、パラジウム、ニッケルを担持したものを用いた。その結果、いずれの触媒を用いても、実施例2と比べて、予熱部の温度を低下させることが可能なことを確認した。

【0019】（実施例5）実施例1と同様にして、反応

後の熱を回収して予熱に利用するため、冷却器を取り外し、予熱器部分に熱回収部として二重間を取り付けた。システムを図4に示す。二重間の外管部に反応後の水を流し、内管を通る燃料及び酸化剤を含む水を予熱した。その結果、予熱温度は、燃料の燃焼開始温度以上に上昇し、燃料使用量を削減することができた。

【0020】（実施例6）これまでは管状反応器を用いていたが、本実施例では内部に流動媒体として砂を充填した流動床反応器を用いた。流動床反応器の構造を図5に示す。流動床下部から燃料、酸化剤、及び水を供給できる構造である。また、燃料、酸化剤、及び水の供給口より上部に廃プラスチック供給口を設け、廃プラスチックを供給した。酸化剤として、空気を使用し、燃料には灯油を用いた。実験を開始するためには、反応器下部に電気炉（図中には示していない）を取付け、あらかじめ燃料が燃焼を開始する温度まで昇温できるようにした。一旦昇温してしまえば、あとは燃料の燃焼熱により、燃焼開始温度以上に維持でき、電気炉を使用する必要はなかった。廃プラスチックとしては、廃家電品の破碎・粉碎・選別工程から出てきたシュレツダダストを、粒径約0.5mmに粉碎し、水と混合して供給した。

【0021】その結果、ダスト中に含まれるプラスチックの大部分が分解し、上部の抜出口よりガス、油等の分解生成物が得られた。

【0022】（実施例7）流動床の流動媒体として石灰石を使用すること以外は実施例5と同様に実験した。実施例5と同様に、ダスト中に含まれるプラスチックの大部分が分解し、上部の抜出口よりガス、油等の分解生成物が得られた。実験終了後に、流動媒体である石灰石を分析したところ、塩化カルシウムが検出され、プラスチック中に含有されていた塩素が、流動媒体である石灰石に固定されていることが明らかになった。

【0023】

【発明の効果】本発明によれば、水に燃料と酸化剤を添加し、燃料の燃焼熱により水を昇温するので、効率良く昇温でき、かつ燃料供給量を変化させることで反応温度を制御することができるので、目的とする反応生成物を効率よく回収することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の廃プラスチックリサイクルシステムの一実施例を示す図。

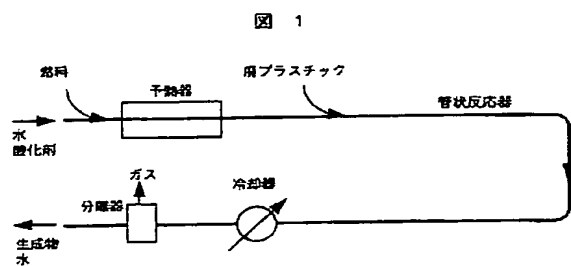
【図2】酸化剤、燃料、廃プラスチックの供給方法と管状反応器を示す図。

【図3】触媒の配置を示す図。

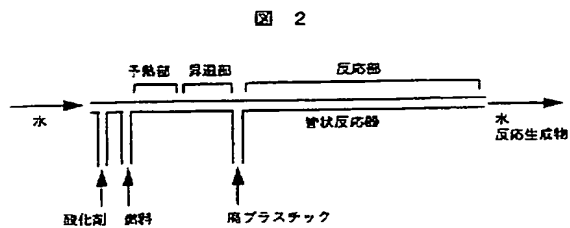
【図4】熱回収を組み込んだ廃プラスチックリサイクルシステムの一実施例を示す図。

【図5】流動床反応器の構造を示す図。

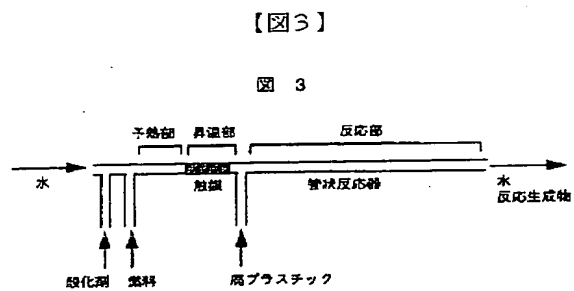
【図1】



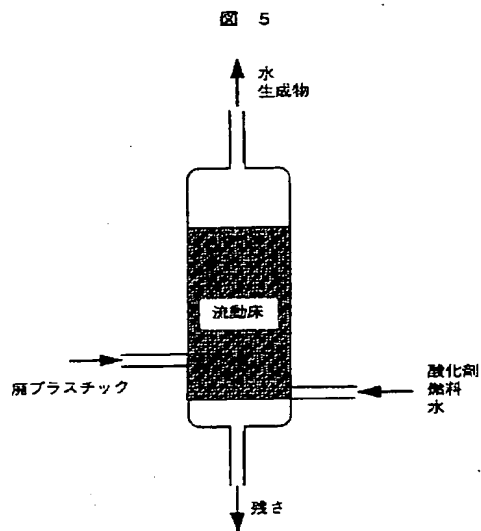
【図2】



【図4】



【図5】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.⁶
 // B 2 9 K 101:00
 105:26

識別記号

F I

(72)発明者 飛田 紘
茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株
式会社日立製作所日立研究所内

(72)発明者 山下 寿生
茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株
式会社日立製作所日立研究所内
(72)発明者 福島 敏彦
茨城県土浦市神立町502番地 株式会社日
立製作所機械研究所内

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☒ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☒ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☒ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.